

Patent number: JP2000284705
Publication date: 2000-10-13
Inventor: TOMOIKE KAZUHIRO; SAKAEDA NOBORU
Applicant: IDEMITSU KOSAN CO
Classification:
- international: *G09F9/00; H01L51/50; H05B33/12; H05B33/14; H05B33/22; G09F9/00; H01L51/50; H05B33/12; H05B33/14; H05B33/22; (IPC1-7): G09F9/00; H05B33/12; H05B33/14; H05B33/22*
- european:
Application number: JP19990095127 19990401
Priority number(s): JP19990095127 19990401

2007/11/01

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-284705

(P 2 0 0 0 - 2 8 4 7 0 5 A)

(43) 公開日 平成12年10月13日 (2000. 10. 13)

(51) Int. Cl.

識別記号

G09F 9/00

327

H05B 33/12

33/14

33/22

F I

G09F 9/00

327

H05B 33/12

33/14

33/22

テマコード (参考)

Z 3K007

E 5G435

A

Z

審査請求 未請求 請求項の数11 O L (全15頁)

(21) 出願番号

特願平11-95127

(22) 出願日

平成11年4月1日 (1999. 4. 1)

(71) 出願人 000183646

出光興産株式会社

東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

(72) 発明者 友池 和浩

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(72) 発明者 栄田 暢

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(74) 代理人 100086759

弁理士 渡辺 喜平

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB04 AB18 BB06 CA01

CB01 DA01 DB03 EB00 FA01

5G435 AA03 AA04 AA17 BB05 CC12

EE12 FF02 FF08 FF11 GG03

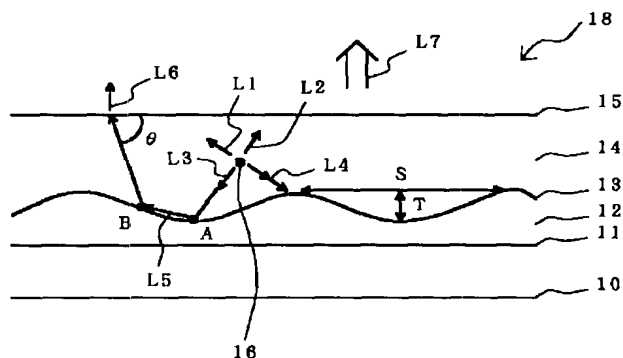
GG12 HH02 KK05

(54) 【発明の名称】 光学的表示装置および光学的表示装置の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 蛍光物質で全方位に放射される光を十分に利用することができ、発光輝度が高い光学的表示装置等を提供する。

【解決手段】 面状発光体の発光面側に、透光性層と、色変換層とが順次に積層された光学的表示装置において、色変換層の屈折率を透光性層の屈折率よりも大きくし、かつ、色変換層と透光性層との界面を凹凸形状とする。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 面状発光体の発光面側に、透光性層と、色変換層とが順次に積層された光学的表示装置において、前記色変換層の屈折率を前記透光性層の屈折率よりも大きくし、かつ、前記色変換層と前記透光性層との界面を凹凸形状としてあることを特徴とする光学的表示装置。

【請求項 2】 前記凹凸形状における隣接する凸部の頂点間の平均距離を $0.5 \sim 10 \mu\text{m}$ の範囲内の値とすることを特徴とする請求項 1 に記載の光学的表示装置。

【請求項 3】 前記凹凸形状における凸部の頂点と凹部の底点との平均距離を $0.5 \sim 10 \mu\text{m}$ の範囲内の値とすることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の光学的表示装置。

【請求項 4】 前記色変換層が、当該色変換層に入射された光よりも長波長の光を発する蛍光変換層であることを特徴とする請求項 1 ～ 3 のいずれか一項に記載の光学的表示装置。

【請求項 5】 前記面状発光体が有機エレクトロルミネッセンス素子であることを特徴とする 1 ～ 4 のいずれか一項に記載の光学的表示装置。

【請求項 6】 面状発光体の発光面側に、透光性層と、中間層と、色変換層とが順次に積層された光学的表示装置において、前記色変換層の屈折率を前記中間層の屈折率よりも大きくし、かつ、前記中間層と前記透光性層との界面を凹凸形状としてあることを特徴とする光学的表示装置。

【請求項 7】 面状発光体の発光面側に、透光性層と、色変換層とが順次に積層されており、かつ、色変換層の屈折率が透光性層の屈折率よりも大きい光学的表示装置の製造方法において、前記色変換層と前記透光性層との界面を凹凸形状とする工程を含むことを特徴とする光学的表示装置の製造方法。

【請求項 8】 前記色変換層と前記透光性層との界面を凹凸形状とする工程において、前記色変換層の表面を化学的処理および物理的処理あるいはいずれか一方の処理を施すことを特徴とする請求項 7 に記載の光学的表示装置の製造方法。

【請求項 9】 前記色変換層と前記透光性層との界面を凹凸形状とする工程において、表面に凹凸形状を有する離型性フィルムを介した状態で、前記色変換層を光硬化あるいは熱硬化することを特徴とする請求項 7 または 8 に記載の光学的表示装置の製造方法。

【請求項 10】 前記色変換層と前記透光性層との界面を凹凸形状とする工程において、表面に凹凸形状を有する透光性層を積層した状態で、前記色変換層を光硬化あるいは熱硬化することを特徴とする請求項 7 または 8 に記載の光学的表示装置の製造方法。

【請求項 11】 面状発光体の発光面側に、透光性層と、中間層と、色変換層とが順次に積層されており、かつ、色変換層の屈折率が透光性層の屈折率よりも大きい光学的表示装置の製造方法において、前記中間層と前記透光性層との界面を凹凸形状とする工程を含むことを特徴とする光学的表示装置の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、発光輝度が高い光学的表示装置、例えば有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、単に有機 EL 素子と称する場合がある。）に関し、また、このような光学的表示装置が効率的に得られる光学的表示装置の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 電子ディスプレイデバイスは、一般に man-machine-interface といわれるように、各種装置（machine）からの各種情報を視覚を通して人間（man）に伝達する電子デバイスであって、人間と装置とを結ぶ重要な橋渡しの役割（interface）を担っている。この電子デバイスには、発光系と受光系とがあり、発光系としては、例えば CRT（陰極線管）、PDP（プラズマディスプレイ）、ELD（エレクトロルミネッセンスディスプレイ）、VFD（蛍光表示管）、LED（発光ダイオード）などが挙げられる。一方、受光系としては、例えば LCD（液晶ディスプレイ）、ECD（エレクトロケミカルディスプレイ）、EPID（電気泳動ディスプレイ）、SPD（分散粒子配向形ディスプレイ）、TBD（着色粒子回転型ディスプレイ）、PLZT（透明強誘電性 PLZT [(Pb, La)(Zr, Ti)O₃] セラミックディスプレイ）などが挙げられる。

【0003】 ここで、上記発光形のディスプレイにおけるフルカラー化の方法としては、（1）多色（例えば赤、青、緑の三原色）の発光部分を平面的に分離配置して、それぞれ発光させる方法、（2）LCD を含むが、バックライトの白色光をカラーフィルターで多色に分解させる方法、及び（3）ある一色（例えば青）の発光を平面的に分離配置した蛍光変換膜に吸収させ、それぞれの蛍光変換膜から異なる蛍光（例えば赤、緑）を発光させる方法が知られている。

【0004】 しかしながら、上記（1）の方法においては、赤、青、緑の発光体（素子）をそれぞれ作成する必要があり、各発光体の材料の選択や発光体を平面的に微細に分離配置するプロセスにおいて、困難を伴う場合があるし、また、（2）の方法においては、白光色を多色に分解するために、各色の明るさが低減する（三原色の場合は 3 分の 1）のを免れないという問題がある。

【0005】 これに対し、上記（3）の蛍光変換膜を用いる方法においては、ある一色の発光体があれば、平面的に微細に分離配置した蛍光変換膜を発光を吸収できる

位置とは別に配置すればよいので、プロセスが容易であることが類推されるし、原理的に蛍光変換によって各色の明るさが低減しないという問題がある。

【0006】そこで、蛍光変換膜を用いて、一色の発光体から多色の発光を蛍光変換する方法については、一色はエネルギー的に高い発光であることが望ましく、可視光の場合、青色であればよりエネルギーの低い緑色や赤色への変換が可能となり、三原色の多光発光が可能となる。また、紫外光の場合も同様に三原色の多光発光が可能となる。特に有機エレクトロルミネッセンス（以下、エレクトロルミネッセンスをELと略記する。）発光素子の場合には、高効率で高輝度の青色発光が実現されており、また、有機物で構成されるため、あらゆる色の発光が有機物の設計により達成される期待が大きい。

【0007】一方、カラーディスプレイにおいて輝度は重要な因子である。蛍光変換膜を用いた有機EL発光素子からなるカラーディスプレイにおいても同様であり、この場合、蛍光変換膜からの発光輝度に合わせて全体の発光輝度が調整されることになる。つまり、蛍光変換膜からの発光輝度を高くすることで、全体の発光輝度を高くすることができる。蛍光変換膜からの発光輝度を高くする方法としては、光源である有機EL発光素子の発光輝度を上げる方法と蛍光変換膜の変換効率をあげる方法がそれぞれ提案されている。

【0008】例えば、EL発光素子の発光輝度を高めるために、特開平7-37688号公報には、図6に示すような基板125上にEL構造体130が形成されたEL素子120が開示されている。このEL素子120における基板125の発光面側には、分光フィルタ121、122がそれぞれ形成してあり、基板125のEL構造体130側には、厚み方向に円柱状に形成され、周囲よりも屈折率が大きい材料からなる高屈折率部133が設けてある。

【0009】また、特開平10-189237号公報には、EL素子（面状発光体）144の発光輝度を高めたり、発光均一化する目的のために、図7に示すように、EL素子の発光面に輝度分布制御材139を設けたEL素子（面状発光体）144が開示されている。

【0010】さらに、特開平4-192290号公報には、EL素子（面状発光体）155の発光輝度を高めるために、図8に示すような、EL素子155の発光面に集光用のマイクロレンズ150を備えた薄膜EL装置154が開示されている。また、一方、蛍光変換膜の変換効率を上げる方法として特開平11-8070号公報には、図9に示すような、EL素子168の前面に、光拡散層162を配設してなる表示装置が開示されている。この光拡散層162は、透明性を有する樹脂バインダー中に、光散乱性の微粒子を分散させて構成してある。

【0011】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、特開平

11-8070号公報に開示された有機EL素子では、蛍光物質で放射される光のうち、EL素子の発光面側に戻ってくる光を十分に利用することができずに、得られる発光輝度が不十分であるという問題が見られた。また、いずれの有機EL素子等も特殊な構造を有する基板や輝度分布制御材等を使用する必要があり、構造が複雑化したり、あるいは製造が困難であるという問題が見られた。

【0012】そこで、本発明の発明者らは上記問題を鋭意検討したところ、色変換層の屈折率と透光性層の屈折率との大小関係を規定するとともに、色変換層と透光性層との界面構造等を工夫することにより、蛍光物質で放射される光を十分に利用することができ、容易に発光輝度を向上させることができることを見出した。すなわち、本発明は、簡易な構造により、高い発光輝度が得られる光学的表示装置およびこのような光学的表示装置が効率的に得られる光学的表示装置の製造方法を提供することを目的とする。

【0013】

【課題を解決するための手段】本発明の一つの態様は、面状発光体の発光面側に、透光性層と、色変換層とが順次に積層された光学的表示装置において、色変換層の屈折率を透光性層の屈折率よりも大きくし、かつ、色変換層と透光性層との界面を凹凸形状としてあることを特徴とする光学的表示装置である。このように構成すると、簡易な光学的表示装置の構造により、蛍光物質で放射される光を十分に利用することができ、高い発光輝度を得ることができる。

【0014】また、本発明の光学的表示装置を構成するにあたり、凹凸形状における隣接する凸部の頂点間の平均距離を0.5～10 μ mの範囲内の値とすることが好ましい。

【0015】また、本発明の光学的表示装置を構成するにあたり、凹凸形状における凸部の頂点と凹部の底点との平均距離を0.5～10 μ mの範囲内の値とすることが好ましい。

【0016】また、本発明の光学的表示装置を構成するにあたり、色変換層が、当該色変換層に入射された光よりも長波長の光を発する蛍光変換層であることが好ましい。

【0017】また、本発明の光学的表示装置を構成するにあたり、面状発光体が有機エレクトロルミネッセンス素子であることが好ましい。

【0018】また、本発明の別の態様は、面状発光体の発光面側に、透光性層と、中間層と、色変換層とが順次に積層されており、色変換層の屈折率を中間層の屈折率よりも大きくし、かつ、中間層と透光性層との界面を凹凸形状としてあることを特徴とする光学的表示装置である。このように構成すると、色変換層の表面を平滑としたまま、蛍光物質で放射される光を十分に利用すること

ができ、優れた発光輝度を得ることができる。

【0019】また、本発明の別の態様は、面状発光体の発光面側に、透光性層と、色変換層とが順次に積層されており、かつ、色変換層の屈折率が透光性層の屈折率よりも大きい光学的表示装置の製造方法であって、色変換層と透光性層との界面を凹凸形状とする工程を含むことを特徴とする光学的表示装置の製造方法である。このように実施すると、簡易な構造であって、優れた発光輝度を得ることができる光学的表示装置を効率的に得ることができる。

【0020】また、本発明の光学的表示装置の製造方法を実施するにあたり、色変換層と透光性層との界面を凹凸形状とする工程において、色変換層の表面に化学的処理および物理的処理（機械的処理）あるいはいずれか一方の処理を施すことが好ましい。このように実施すると、色変換層と透光性層との界面を容易に凹凸形状とすることができる。また、このように実施すると、透光性層を形成する前に、凹凸形状を検査することができる。

【0021】また、本発明の光学的表示装置の製造方法を実施するにあたり、色変換層と透光性層との界面を凹凸形状とする工程において、表面に凹凸形状を有する離型性フィルムを介した状態で、色変換層を光硬化あるいは熱硬化することが好ましい。このように実施すると、色変換層を形成すると同時に界面に凹凸形状とすることができる。また、このように実施すると、透光性層を形成する前に、凹凸形状を検査することができる。

【0022】また、本発明の光学的表示装置の製造方法を実施するにあたり、色変換層と透光性層との界面を凹凸形状とする工程において、表面に凹凸形状を有する透光性層を積層した状態で、色変換層を光硬化あるいは熱硬化することが好ましい。このように実施すると、色変換層を形成すると同時に、透光性層との界面に凹凸形状を設けることができる。また、このように実施すると、透光性層に凹凸形状を先に設けることになるが、この段階で凹凸形状を検査することができる。

【0023】また、本発明の別の態様は、面状発光体の発光面側に、透光性層と、中間層と、色変換層とが順次に積層されており、かつ、色変換層の屈折率が透光性層の屈折率よりも大きい光学的表示装置の製造方法であって、中間層と透光性層との界面を凹凸形状とする工程を含むことを特徴としている。このように実施すると、色変換層を平滑としたまま、より優れた発光輝度を得ることができる光学的表示装置を効率的に得ることができる。

【0024】

【発明の実施の形態】以下、図面を参照して、本発明の実施の形態について具体的に説明する。なお、参照する図面は、この発明が理解できる程度に各構成成分の大きさ、形状および配置関係を概略的に示してあるに過ぎない。したがって、この発明は図示例にのみ限定されるも

のではない。また、図面では、断面を表すハッチングを省略する場合がある。

【0025】〔第1の実施形態〕第1の実施形態は、図1に示すように、有機EL素子（面状発光体）10の発光面側に、透光性層12と、色変換層14とが順次に積層された有機EL表示装置18の断面を模式的に表した図である。色変換層14の屈折率（ n_1 と称する場合がある。）を、透光性層12の屈折率（ n_2 と称する場合がある。）よりも大きくし、かつ、色変換層14と透光性層12との界面を凹凸形状としてあるため、全反射の臨界角の式を満足する領域A、Bを形成している。また、図1中に、記号L1～L4で示される矢印は、蛍光物質（蛍光色素）16から全方位に射出された蛍光の光路を表しており、および記号L5～L6で示される矢印は、蛍光物質16から射出された蛍光のうち、色変換層14と透光性層12との界面での反射光の光路をそれぞれ表している。以下、図1を参照するとともに、図2と対比させながら、第1の実施形態である有機EL表示装置18の構成および作用を具体的に説明する。

【0026】（1）作用

まず、第1の実施形態である有機EL表示装置18において、有機EL素子10の電極間に所定の電圧を印加することにより、有機EL素子10を発光させることができる。すると、有機EL素子10の発光により射出されたEL光は、有機EL素子10の発光面11から、透光性層12に入射される。このとき、透光性層12の光透過率を大きくしてあるために、EL光はほとんど光吸収されことなく通過することができる。この後、EL光は、界面13を介して、色変換層14に入射される。

【0027】次いで、色変換層14に入射されたEL光は、色変換層14に均一に分散されている蛍光物質16に吸収される。したがって、蛍光物質16はEL光により効率的に励起されて、蛍光物質16から、全方位に向かって蛍光を発することになる。この状態の光路を、図面上、L1～L4でそれぞれ表している。ここで、蛍光物質16から全方位に向かって発せられた蛍光L1～L4のうち、色変換層14の出射面15に向かった蛍光L1～L2は、光路L7で示されるように外部に取り出されることになる。一方、蛍光物質16から全方位に向かって発せられた蛍光L1～L4のうち、色変換層14の出射面15と反対側に向かった蛍光L3～L4は、全反射の臨界角の式を満足する領域、例えば、A点やB点において効率的に反射されて、進行方向が変わり、色変換層14の出射面15に対して概ね垂直方向に向かうことになる。したがって、この反射光の出射面15に対する入射角（ θ ）が、色変換層14の屈折率と、空気の屈折率との関係で全反射の臨界角以内であれば、光路L6で示されるように外部（空气中）に取り出され、本来的に外部に取り出された光路L7で示される光と合わさって視認されることになる。

【0028】それに対して、従来の有機EL表示装置118は、図2にその断面を模式的に示すように、色変換層114と有機EL素子（面状発光体）110との界面111が平滑である。なお、図2においても、図1と同様に、蛍光物質116から出射された蛍光等の光路を記号L¹1〜L¹7でそれぞれ示してある。したがって、従来の有機EL表示装置118において、蛍光物質116から全方位に向かって発せられた蛍光L¹1〜L¹4のうち、色変換層114の出射面115と反対側に向かった蛍光L¹3〜L¹4は、全反射の臨界角の式を満足する領域が少ないため、有機EL素子10内にそのまま進入する割合が多くなる。この有機EL素子10内に戻ってくる光路を図面上、矢印L¹6で示している。

【0029】また、蛍光L¹1〜L¹4のうち一部はA¹点で反射されて、色変換層114の出射面115に向かうが、色変換層114の出射面115に対して比較的小さな角度(θ¹)で入射される。したがって、色変換層114の屈折率と、空気の屈折率との関係で全反射の臨界角以上の角度となりやすく、図示するように、B点で反射されて、外部（空气中）に有効に取り出すことができない。よって、従来の有機EL表示装置118においては、外部に取り出せるのは記号L¹7で示される光のみであり、第1の実施形態である有機EL表示装置18と比較して、外部で視認される光量が少なくなる。

【0030】（2）色変換層

第1の実施形態である有機EL表示装置18において、色変換層14の構成材料は特に制限されるものではないが、例えば、蛍光色素および樹脂、または蛍光色素のみからなり、蛍光色素および樹脂は、蛍光色素を顔料樹脂および／またはバインダー樹脂中に溶解または分散させた固形状態のものを挙げることができる。

【0031】具体的な蛍光色素について説明すると、有機EL素子における近紫外光から紫色の発光を青色発光に変換する蛍光色素としては、1, 4-ビス（2-メチルスチリル）ベンゼン（以下Bis-MBS）、トランス-4, 4'-ジフェニルスチルベン（以下DPS）等のスチルベン系色素、7-ヒドロキシ-4-メチルクマリン（以下クマリン4）等のクマリン系色素を挙げることができる。

【0032】次に、有機EL素子における青色、青緑色または白色の発光を緑色発光に変換する場合の蛍光色素については、例えば、2, 3, 5, 6-1H, 4H-テトラヒドロ-8-トリフルロメチルキノリジノ（9, 9a, 1-g h）クマリン（以下クマリン153）、3-（2'-ベンゾチアゾリル）-7-ジエチルアミノクマリン（以下クマリン6）、3-（2'-ベンズイミダゾリル）-7-N, N-ジエチルアミノクマリン（以下クマリン7）等のクマリン色素、その他クマリン色素系染料であるベシクイエロー51、また、ソルベントイエロー11、ソルベントイエロー116等のナフタルイ

ミド色素を挙げることができる。

【0033】また、有機EL素子における青色から緑色までの、または白色の発光を、橙色から赤色までの発光に変換する場合の蛍光色素については、例えば、4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-（p-ジメチルアミノスチリル）-4H-ピラン（以下DCM）等のシアニン系色素、1-エチル-2-（4-（p-ジメチルアミノフェニル）-1, 3-ブタジエニル）-ピリジニウム-パークロレート（以下ピリジン1）等のピリジン系色素、ローダミンB、ローダミン6G等のローダミン系色素、その他にオキサジン系色素等が挙げられる。

【0034】さらに、各種染料（直接染料、酸性染料、塩基性染料、分散染料等）も蛍光性があれば蛍光色素として選択することが可能である。また、蛍光色素をポリメタクリル酸エステル、ポリ塩化ビニル、塩化ビニル酢酸ビニル共重合体、アルキッド樹脂、芳香族スルホンアミド樹脂、ユリア樹脂、メラニン樹脂、ベンゾグアナミン樹脂等の顔料樹脂中にあらかじめ練り込んで顔料化したものでもよい。また、これらの蛍光色素または顔料は、必要に応じて、単独または混合して用いてもよい。

【0035】一方、バインダー樹脂は、透明な（可視光における光透過率が50%以上）材料が好ましい。例えば、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂（高分子）が挙げられる。

【0036】なお、色変換層を平面的に分離配置するために、フォトリソグラフィ法が適用できる感光性樹脂も選ばれる。例えば、アクリル酸系、メタクリル酸系、ポリケイ皮酸ビニル系、環ゴム系等の反応性ビニル基を有する光硬化型レジスト材料が挙げられる。また、印刷法を用いる場合には、透明な樹脂を用いた印刷インキ（メジウム）が選ばれる。例えば、ポリ塩化ビニル樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキッド樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂のモノマー、オリゴマー、ポリマーまた、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂を用いることができる。

【0037】色変換層が主に蛍光色素からなる場合は、所望の色変換層パターンをマスクを介して真空蒸着またはスパッタリング法で成膜され、一方、蛍光色素と樹脂からなる場合は、蛍光色素と樹脂と適当な溶剤とを混合、分散または可溶化させて液状とし、スピンコート、ロールコート、キャスト法等の方法で成膜し、フォトリソグラフィー法で所望の色変換層パターンでパターニングしたり、スクリーン印刷等の方法で所望の色変換層パターンでパターニングするのが一般的である。

【0038】また、光硬化性樹脂を用いる場合、光開始剤や増感剤を添加することが好ましい。このように構成することにより、光硬化性樹脂を容易に硬化させることができる。このような光開始剤としては、アセトフェノン系化合物、ベンゾイン系化合物、ベンゾフェノン系化合物、チオキサノン系化合物、トリアジン系化合物、ラジカル発生剤や光酸発生剤等が挙げられる。また、増感剤としては、トリエタノールアミン、4, 4'-ジメチルアミノベンゾフェノン、4-ジメチルアミノ安息香酸エチル等が挙げられる。

【0039】また、光硬化性樹脂に紫外線吸収剤を添加することが好ましい。このように構成することにより、有機蛍光物質の劣化防止を図ることができるためである。このような紫外線吸収剤としては、例えば、サリチル酸系化合物、ベンゾフェノン系化合物、ベンゾトリアゾール系化合物、トリアジン系化合物、シアノアクリレート系化合物からなる群から選択される少なくとも一つの化合物であることが好ましい。

【0040】また、光硬化性樹脂に酸化防止剤および光

塩化ビニル樹脂	: 1. 54 (波長589nm)
塩化ビニリデン樹脂	: 1. 60 (波長589nm)
酢酸ビニル樹脂	: 1. 45 (波長589nm)
ポリエチレン樹脂	: 1. 51 (波長589nm)
ポリスチレン樹脂	: 1. 59 (波長589nm)
メタクリル酸メチル樹脂	: 1. 49 (波長589nm)
メラミン樹脂	: 1. 60 (波長589nm)

【0042】また、第1の実施形態である有機EL表示装置18において、色変換層14の厚さについても特に制限されるものではないが、例えば、0. 1 μ m~1mmの範囲内の値とするのが好ましい。この理由は、色変換層14の厚さが0. 1 μ m未満となると、機械的強度が低下したり、積層することが困難となる場合があるためである。一方、色変換層14の厚さが1mmを超えると、光透過率が著しく低下して、外部に取り出せる光量が低下したり、あるいは有機EL表示装置18の薄型化が困難となる場合があるためである。したがって、色変換層14の厚さを0. 1 μ m~1mmの範囲内の値とするのが好ましく、1 μ m~500 μ mの範囲内の値とするのがより好ましく、5 μ m~100 μ mの範囲内の値とするのがさらに好ましい。

【0043】なお、図1に示す有機EL表示装置18において、色変換層14を便宜上、一つのみ示しているが、同一平面上に、複数個設けても良い。例えば、有機EL素子10上の発光面11上に、赤用色変換層と、青用色変換層と、緑用色変換層とを、それぞれ近接して配置しても良い。このように構成すると、有機EL表示装置18のカラー化を容易に図ることができる。

【0044】(3) 透光性層

第1の実施形態である有機EL表示装置18において、透光性層12は、波長400~700nmにおいて、光

安定剤あるいはいずれか一方の化合物を含むことも好ましい。このように酸化防止剤や光安定剤を添加することにより、優れた耐久性が得られるためである。好ましい酸化防止剤としては、2, 6-ジ-tert-ブチル-p-クレゾール、ブチル化ヒドロキシアニソール(BHA)やテトラキス-[メチレン-3-(3', 5'-ジ-tert-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタン等が挙げられる。また、好ましい光安定剤としては、ニッケルビス(オクチルフェニル)サルファイド、[2, 2'-チオビス(4-tert-オクチルフェノラート)]-n-ブチルアミンニッケル、ニッケルコンプレックス-3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル-リン酸モノエチレート、ニッケル-ジブチルジチオカーバメート等が挙げられる。

【0041】なお、参考のため、好ましい色変換層14の構成材料(顔料樹脂、バインダー樹脂)の屈折率を示すと、以下のような値である。

透過率を50%以上の値とするのが好ましい。この理由は、透光性層12の光透過率が50%未満の値となると、透光性層12を介して外部に取り出すことができる光量が低下する場合があるためである。したがって、波長400~700nmにおいて、透光性層12の光透過率を70%以上の値とするのがより好ましく、90%以上の値とするのがさらに好ましい。

【0045】また、このような透光性層12の構成材料としては、ポリアクリル系樹脂、ポリメタクリル系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリビニルアルコール系樹脂、ポリビニルピロリドン系樹脂、ポリウレタン系樹脂、エポキシ系樹脂、シアネート系樹脂、メラミン系樹脂、フェノール系樹脂、マレイン系樹脂、酢酸ビニル系樹脂、ポリアセタール系樹脂、シリコーン系樹脂、フッ素系樹脂、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の一種単独または二種以上の有機材料の組み合わせが挙げられる。

【0046】また、透光性層12の構成材料として、ガラス材料、酸化珪素、酸化アルミニウム、酸化チタン、酸化イットリウム、酸化ゲルマニウム、酸化亜鉛、酸化マグネシウム、酸化カルシウム、酸化ストロンチウム、酸化バリウム、酸化鉛、酸化ナトリウム、酸化ジルコニア、酸化ナトリウム、酸化リチウム、酸化硼素、ちっ化

シリコン等の一種単独または二種以上の無機材料の組み合わせが挙げられる。また、好ましいガラス材料として、ソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラスを透光性層の構成材

メタクリル酸メチル樹脂	: 1.49 (波長 589 nm)
酸化珪素 (SiO_2)	: 1.54 (波長 589 nm)
酸化硼素 (B_2O_3)	: 1.77 (波長 546 nm)
ガラス	: 1.49 (波長 589 nm)
テトラフルオロエチレン樹脂	: 1.49 (波長 589 nm)

【0048】また、透光性層 12 の厚さは特に制限されるものではないが、具体的に、 $0.1\mu\text{m} \sim 1\text{mm}$ の範囲内の値とするのが好ましい。この理由は、透光性層 12 の厚さが $0.1\mu\text{m}$ 未満となると、機械的強度が低下したり、積層することが困難となる場合があるためであり、一方、透光性層 12 の厚さが 1mm を超えると、光透過率が著しく低下する場合があるためである。したがって、透光性層 12 の厚さを $1\mu\text{m} \sim 500\mu\text{m}$ の範囲内の値とするのがより好ましく、 $1\mu\text{m} \sim 100\mu\text{m}$ の範囲内の値とするのがさらに好ましい。

【0049】(4) 界面における凹凸形状

第 1 の実施形態である有機 EL 表示装置 18 において、透光性層 12 と色変換層 14 との界面 13 における凹凸形状の大きさ等については特に制限されるものではないが、凸形状における隣接する凸部の頂点間の平均距離 (図 1 中、記号 S で示す。) を $0.5 \sim 10\mu\text{m}$ の範囲内の値とすることが好ましい。この理由は、凸部の頂点間の平均距離が $0.5 \sim 10\mu\text{m}$ の範囲外となると、かかる界面 13 での光の反射効率が低下する場合があるためである。したがって、凸部の頂点間の平均距離を、 $0.6 \sim 8\mu\text{m}$ の範囲内の値とすることがより好ましく、 $1 \sim 5\mu\text{m}$ の範囲内の値とすることがさらに好ましい。

【0050】また、透光性層 12 と色変換層 14 との界面 13 における凹凸形状の凸部の頂点と凹部の底点との平均距離 (図 1 中、記号 T で示す。) を $0.5 \sim 10\mu\text{m}$ の範囲内の値とすることが好ましい。この理由は、凸部の頂点と凹部の底点との平均距離が $0.5 \sim 10\mu\text{m}$ の範囲外となると、かかる界面 13 での光の反射効率が低下する場合があるためである。したがって、凸部の頂点間の平均距離を、 $0.6 \sim 8\mu\text{m}$ の範囲内の値とすることがより好ましく、 $1 \sim 5\mu\text{m}$ の範囲内の値とすることがさらに好ましい。

【0051】さらに、界面 13 における凹凸形状についても、平坦形状と比較して全反射の臨界角の式を満足する領域が多く得られるものであれば特に制限されるものでないが、例えば、図 1 に示すように波形状であっても良く、あるいは連続したピラミッド形状 (正四角錐) や不連続のピラミッド形状であっても良い。特にピラミッド形状とした場合には、頂角を 90° 付近とすること

料として挙げることができる。

【0047】なお、参考のため、好ましい透光性層 12 の構成材料例の屈折率を示すと、以下のような値である。

が好ましい。このようにピラミッド形状を構成すると、全反射の臨界角の式を満足する領域をより効率的に設けることができる。

【0052】(5) 有機 EL 素子

第 1 の実施形態においては、面状発光体として LED、VFD、PDP 等も挙げることができるが、より薄型化が可能であって、エネルギー効率が高いことから有機 EL 素子 10 を用いるのが好ましい。また、より具体的には、図 5 に示すように、支持基板 40 上に、陽極層 22 (30、32、34) と、陰極層 20 と、これらに挟持された有機発光層 24、26、28 とから構成した有機 EL 素子 10 を使用するのが好ましい。面状発光体として、このように構成した有機 EL 素子 10 を使用することにより、発光輝度が高い上に、フルカラー化が可能な有機 EL 表示装置 18 を提供することができる。

【0053】まず、図 5 を参照しながら有機発光層 24、26、28 について説明すると、かかる有機発光層 24、26、28 は、発光色に対応した有機発光材料を含んで構成されている。このような有機発光材料としては特に制限されるものではないが、例えば、以下の 3 つの機能を併せ持つことが好ましい。

(a) 電荷の注入機能：電界印加時に陽極あるいは正孔注入層から正孔を注入することができる一方、陰極層あるいは電子注入層から電子を注入することができる機能。

(b) 輸送機能：注入された正孔および電子を電界の力で移動させる機能。

(c) 発光機能：電子と正孔の再結合の場を提供し、これらを発光につなげる機能。

したがって、このような機能を有する有機発光材料として、スチリル基を有する芳香族環化合物が挙げられる。すなわち、スチリル基を有する芳香族環化合物を使用することにより、優れた発光特性や耐久性を得ることができる点で好ましい。

【0054】また、有機発光層 24、26、28 に、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系、ベンゾオキサゾール系等の蛍光増白剤や、スチリルベンゼン系化合物、8-キノリノール誘導体を配位子とする金属錯体を併用することも好ましい。また、ジスチリルアリーレン骨格の有機発光材料、例えば 4,4'-ビス(2,2-

20

30

40

50

ジフェニルビニル) ビフェニル) 等をホストとし、当該ホストに青色から赤色までの強い蛍光物質、例えばクマリン系あるいはホストと同様の蛍光物質をドーブしたものを併用することも好適である。

【0055】また、有機発光層 24、26、28 の膜厚については特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができるが、5 nm～5 μ m の範囲内の値であることが好ましい。この理由は、有機発光層の膜厚が 5 nm 未満となると、発光輝度や耐久性が低下する場合があります、一方、有機発光層の膜厚が 5 μ m を超えると、印加電圧の値が高くなる場合があるためである。したがって、有機発光層の膜厚を 10 nm～3 μ m の範囲内の値とすることがより好ましく、20 nm～1 μ m の範囲内の値とすることがさらに好ましい。

【0056】次に、有機 EL 素子 10 における陽極層 22 (30、32、34) について説明する。かかる陽極層 22 としては仕事関数の大きい (例えば、4.0 eV 以上) 金属、合金、電気導性化合物またはこれらの混合物を使用することが好ましい。具体的には、インジウムチンオキサイド (ITO)、インジウム銅、スズ、酸化亜鉛、金、白金、パラジウム等の 1 種を単独で、または 2 種以上を組み合わせ使用することができる。また、陽極層 22 の厚さも特に制限されるものではないが、10～1000 nm の範囲内の値とするのが好ましく、10～200 nm の範囲内の値とするのがより好ましい。さらに、陽極層 22 に関しては、有機発光層 24、26、28 から発射された光を外部に有効に取り出すことが出来るように、実質的に透明、より具体的には、光透過率が 10% 以上の値であることが好ましい。

【0057】次に、有機 EL 素子 10 における陰極層 20 について説明する。かかる陰極層 20 には、仕事関数の小さい (例えば、4.0 eV 未満) 金属、合金、電気導性化合物またはこれらの混合物を使用することが好ましい。具体的には、マグネシウム、アルミニウム、インジウム、リチウム、ナトリウム、セシウム、銀等の 1 種を単独で、または 2 種以上を組み合わせ使用することができる。また陰極層 20 の厚さも特に制限されるものではないが、10～1000 nm の範囲内の値とするのが好ましく、10～200 nm の範囲内の値とするのがより好ましい。

【0058】次に、有機 EL 素子 10 における支持基板 40 について説明する。かかる支持基板 40 は、機械的強度に優れ、水分や酸素の透過性が少ないものであれば、この種の有機エレクトルミネッセンス表示装置に常用されているものをそのまま用いることができる。具体的には、例えば、ガラスやセラミックス等を挙げることができる。

【0059】第 1 の実施形態の有機 EL 表示装置 18 には、下記①の構成の有機 EL 素子 10 を使用することが出来るが、他の構成要素、例えば正孔注入層や電子注入

層とを組み合わせた有機 EL 素子 10 の使用も考えられる。以下に、他の好ましい有機 EL 素子 10 の構成例②～④を併せて示す。

① 陽極／有機発光層／陰極層

② 陽極／正孔注入層／有機発光層／陰極層

③ 陽極／有機発光層／電子注入層／陰極層

④ 陽極／正孔注入層／有機発光層／電子注入層／陰極層

【0060】〔第 2 の実施形態〕第 2 の実施形態は、有機 EL 表示装置の製造方法に関する実施形態であり、色変換層を形成する工程 (第 1 の工程と称する。) と、当該色変換層の表面を凹凸形状とする工程 (第 2 の工程と称する。) と、透光性層を形成する工程 (第 3 の工程と称する。) と、有機 EL 素子を積層する工程 (第 4 の工程と称する。) とを含むことを特徴とする。なお、有機 EL 表示装置の構成自体については、第 1 の実施形態と同様の内容とすることができるため、ここでの詳細な説明は省略するものとし、図 3 (a)～(d) を参照しながら、有機 EL 表示装置の製造方法の内容について中心に説明する。

【0061】(1) 第 1 の工程

第 1 の工程は、図 3 (a) に示すように、例えば、光硬化性樹脂と、有機蛍光物質と、紫外線吸収剤とを含む色変換層用組成物 (色変換層) 42 を、例えば基材 44 上に成形した後、光硬化させる工程である。また、基材 44 は、例えば、ガラス基板やポリカーボネート樹脂、あるいはポリエステル樹脂等の透明性材料から構成されている。

【0062】ここで、色変換層用組成物 42 を成形するにあたり、光硬化性樹脂と、有機蛍光物質と、紫外線吸収剤等からミキサや三本ロール等の混合機械を用いて均一に組成した後、ナイフコートやグラビアコート、あるいはスピンコートを用いて、例えば、厚さ 1～100 μ m の層状に塗布するのが好ましい。なお、色変換層用組成物 42 を均一に塗布するために有機溶剤を添加している場合には、塗布後、50～100℃の温度範囲で、5～60 分加熱して、有機溶剤を飛散させるのが好ましい。次いで、色変換層用組成物 (色変換層) 42 を光硬化させるためには、ハロゲンランプ、メタルハライドランプ等を用いて紫外線を一定量、例えば 100～2000 mJ/cm² の範囲内で露光することが好ましい。この理由は、紫外線の露光量が 100 mJ/cm² 未満となると、光硬化性樹脂が光硬化しない場合があるためであり、一方、露光量が 2000 mJ/cm² を超えると、有機蛍光物質の劣化が促進される場合があるためである。また、紫外線の波長を 350～400 nm の範囲内の値とするのが好ましい。この理由は、紫外線の波長が 350 nm 未満となると、有機蛍光物質の劣化が促進される場合があるためであり、一方、紫外線の波長が 400 nm を超えると、光硬化性樹脂が光硬化しない場合

があるためである。

【0063】なお、色変換層用組成物 4 2 の光硬化性樹脂の代わりに、熱硬化性樹脂を用いることも好ましい。その場合には、紫外線を照射するかわりに、例えば、温度 5 0 ~ 1 8 0 °C、時間 1 0 ~ 1 8 0 分の条件で加熱して、熱硬化させることが好ましい。

【0064】(2) 第 2 の工程

第 2 の工程は、図 3 (b) に示すように、色変換層用組成物 (色変換層) 4 2 の表面に凹凸形状 4 7 を設ける工程である。かかる凹凸形状 4 7 を設ける方法は特に制限されるものでないが、以下に示す方法が挙げられる。

① 色変換層用組成物 (色変換層) 4 2 を硬化させた後、その表面に化学的処理および物理的処理 (機械的処理) あるいはいずれか一方の処理を施す (第 1 の方法)。

② 色変換層用組成物 (色変換層) 4 2 を硬化させる前に、その表面に凹凸形状を有する離型フィルム (図示せず) を配置して、色変換層用組成物 (色変換層) 4 2 を光硬化あるいは熱硬化する (第 2 の方法)。

③ 色変換層用組成物 (色変換層) 4 2 を硬化させる前に、その表面に凹凸形状を有する透光性層用フィルム (図示せず) を配置して、色変換層用組成物 (色変換層) 4 2 を光硬化あるいは熱硬化する (第 3 の方法)

【0065】上記第 1 の方法において、化学的処理としては、化学エッチング、溶剤処理等が挙げられる。また、物理的処理としては、研磨処理、ショットブラスト処理、タンブラー処理、スパッタエッチング処理、グロー放電処理、コロナ放電処理等の一つ単独あるいは二種以上の組み合わせ処理が挙げられる。これらのうち、特に研磨処理をすることにより、容易に凹凸形状 4 7 を設けることができる。具体的には、研磨処理において、紙やすりやラッピングフィルム (アルミナやダイヤモンド粉末等の微粒子をフィルム上に固定した研磨フィルム) を手動あるいは回転研磨機を使用し適用するとともに、さらにアルミナ等の研磨粒子を研磨材として使用することが好ましい。

【0066】また、上記第 2 の方法において使用する表面に凹凸形状を有する離型フィルムとしては、フッ素系フィルムやシリコン処理フィルム、あるいはポリエチレン樹脂フィルムやポリプロピレン樹脂フィルム等を使用することが好ましい。また、これらの離型フィルムに予めエンボスや研磨処理等の手法により、表面に凹凸形状を設けたフィルムを使用することが好ましい。そして、かかる離型フィルムを色変換層用組成物 (色変換層) 4 2 の表面に配置して、第 1 の工程と同様に紫外線を照射したり、加熱することにより、色変換層用組成物 (色変換層) 4 2 を光硬化あるいは熱硬化するものである。このような離型フィルムであれば、何度も再使用することができるため、製造が極めて経済的である。また、事前に離型フィルム上の凹凸形状を検査することができる

め、結果として、所望の凹凸形状を色変換層用組成物 (色変換層) 4 2 の表面に正確に設けることができる。

【0067】なお、色変換層用組成物 (色変換層) 4 2 を光硬化性樹脂から構成する場合には、耐紫外線特性を有する離型フィルムを使用するのが好ましい。また、色変換層用組成物 (色変換層) 4 2 を熱硬化性樹脂から構成する場合には、耐熱性を有する離型フィルムを使用するのが好ましい。

【0068】さらに、上記第 3 の方法においては、予め表面に凹凸形状を設けた透光性層用フィルムを配置して、色変換層用組成物 (色変換層) 4 2 を光硬化あるいは熱硬化するものである。すなわち、第 3 の方法においては、透光性層用フィルムを、光硬化あるいは熱硬化して色変換層 4 2 を形成した後に除去せずに、そのまま透光性層 4 8 とすることが特徴である。したがって、このように実施することにより、第 2 の工程と、後述する第 3 の工程とを同時に実施することができるため、工程数が少なくなるという利点を得られる。なお、透光性層用フィルムの製造方法や色変換層 4 2 の形成方法については、第 2 の方法における離型フィルムや、第 1 の工程における色変換層 4 2 の形成方法と同様の内容とすることができる。

【0069】(3) 第 3 の工程

第 3 の工程は、図 3 (c) に示すように、表面に凹凸形状を設けた色変換層 4 6 上に、透光性用組成物を塗布して、透光性層 4 8 を形成する工程である。ここで、第 2 の実施形態で使用する透光性用組成物としては、第 1 の実施形態で説明した材料をそのまま使用することができるが、色変換層 4 6 と透光性層 4 8 との間の界面 4 5 に気泡等が入り込まないように、低粘度に調整した透光性用組成物を塗布することがより好ましい。具体的には、透光性用組成物に有機溶剤等を添加し、1 0 ~ 1 0 0 0 0 c p s (温度 2 5 °C) の範囲内の値とするのが好ましい。また、塗布する方法についても特に制限されるものではないが、例えば、ナイフコートやグラビアコート、あるいはスピンコートをを用いて、例えば、厚さ 1 ~ 1 0 0 μm の範囲内の層状に塗布するのが好ましい。なお、透光性用組成物が光硬化系材料から構成されている場合には、紫外線を照射することにより光硬化させることができ、透光性用組成物が熱硬化系材料から構成されている場合には、加熱することにより熱硬化させることができる。

【0070】(4) 第 4 の工程

第 4 の工程は、図 3 (d) に示すように、硬化させた色変換層 4 6 の基材 4 4 側に、有機 EL 素子 5 0 を積層する工程である。この積層方法についても特に制限されるものでなく、予め作製しておいた有機 EL 素子 5 0 を接着剤等を用いて積層しても良いし、あるいは、基材 4 4 の上に、順次に電極や有機発光層を形成しても良い。

【0071】〔第 3 の実施形態〕第 3 の実施形態は、有

機EL表示装置62の製造方法に関する別の実施形態である。この第3の実施形態は、色変換層54を形成する工程（第5の工程と称する。）と、表面に凹凸形状55を有する中間層56を形成する工程（第6の工程と称する。）と、透光性層58を形成する工程（第7の工程と称する。）と、有機EL素子60を積層する工程（第8の工程と称する。）とを含むことを特徴とする。以下、図4（a）～（d）を参照しながら、第1および第2の実施形態と異なる内容について中心に説明する。

【0072】（1）第5の工程

第5の工程を図4（a）に示すが、色変換層54を基材52上に形成する工程であり、第2の実施形態における第1の工程の内容と実質的に同一であるため、ここでの説明は省略する。

【0073】（2）第6の工程

第6の工程は、図4（b）に示すように、表面に凹凸形状55を有する中間層56を形成する工程である。かかる凹凸形状55を設ける方法については、特に制限されるものでないが、以下に示す方法が挙げられる。

① 中間層56を色変換層54の上に形成した後、中間層56の表面に化学的処理および物理的処理あるいはいずれか一方の処理を施す（第4の方法）。

② 中間層用組成物の表面に、表面に凹凸形状を有する離型フィルム（図示せず）を配置した状態で、中間層用組成物を光硬化あるいは熱硬化する（第5の方法）。

③ 中間層用組成物を用いて、表面に凹凸形状を有する中間層56を予め形成し、それを色変換層54の上に積層する（第6の方法）。

【0074】ここで、第4および第5の方法は、第2の実施形態における第1および第2の方法と同様であるため、ここでの説明は省略する。また、中間層56の構成材料としては、屈折率が透光性層58の屈折率よりも小さいものであれば、同種内容とすることができる。したがって、ポリアクリル系樹脂やポリメタクリル系樹脂等の有機材料や、ガラス材料や酸化ジルコニア等の無機材料が使用可能である。

【0075】また、第6の方法において、表面に凹凸形状55を有する中間層56を予め形成する方法は特に制限されるものではないが、例えば、金型成型やエンボス方法により、容易に形成することができる。このように事前に凹凸形状55を設けた中間層56であれば、予め凹凸形状55を検査することができる。したがって、所望の凹凸形状55を色変換層用組成物（色変換層）54の表面に、より正確に設けることができる。なお、図4（b）において、凹凸形状55を連続したピラミッド形状（正四角錐）としてあるが、波型や異形の凹凸形状であっても良く、あるいは不連続のピラミッド形状としても良い。

【0076】（3）第7の工程

第7の工程は、図4（c）に示すように透光性層58

を、中間層56上に形成する工程であるが、この第7の工程は、第2の実施形態における第3の工程と実質的に同様であるため、ここでの詳細な説明は省略する。

【0077】（4）第8の工程

第8の工程は、図4（d）に示すように硬化させた色変換層54の基材52側に、有機EL素子60を積層する工程であるが、この工程は、第2の実施形態における第3の工程と実質的に同様であるため、ここでの詳細な説明は省略する。

10 【0078】

【実施例】[実施例1]

（1）色変換層の作製

まず、ベンゾグアナミン樹脂82gと、有機蛍光物質としてのクマリン6 6g（6重量%）と、ローダミンB 6g（6重量%）と、ローダミン6G 6g（6重量%）とからなる蛍光顔料を組成した。次いで、ポリ塩化ビニル樹脂（平均分子量2万）70g（70重量%）に対して、蛍光顔料を30g（30重量%）を均一に混合し、さらにシクロヘキサノンを添加して、粘度8000cps（温度25℃）の赤色蛍光変換層用組成物とした。

【0079】得られた赤色蛍光変換層用組成物を、縦25mm、横75mm、厚さ1.1mmのガラス基板（コーニング7059）上に、バーコータを用いて20μmの厚さになるように塗布し、温度80℃、時間10分の条件で乾燥し、赤色蛍光変換層とした。次いで、#800の紙やすりを用いて、純水を噴霧しながら赤色蛍光変換層上をラッピング研磨し、さらに、回転研磨機（Speed Fam社製）により、アルミナ微粒子研磨剤を用いて純水を噴霧しながら赤色蛍光変換層上を研磨した。この状態で、赤色蛍光変換層上の表面における凹凸を、レーザー顕微鏡を用いて測定したところ、凹凸形状における隣接する凸部の頂点間の平均距離は2.5μmであり、凹凸形状における凸部の頂点と凹部の底点との平均距離は1.1μmであった。さらに、赤色蛍光変換層の屈折率を、屈折率計を用いて測定したところ、1.58（波長600nm）であった。

【0080】次いで、研磨処理した赤色蛍光変換層の上に、透光性層としてアクリレート系光硬化型樹脂JNPC06（JSR（株）製、固形物38重量%）をスピニングコートし、温度80℃、時間10分の条件で加熱乾燥した。この状態で高圧水銀灯を光源とするコンタクト式露光機に装着し、露光量が600mJ/cm²となる様に紫外線（波長365nm）を照射し、さらに温度160℃、時間30分の条件で熱硬化させた。こうして、透光性層付きの赤色蛍光変換基板を作製した。なお、透光性層のみの屈折率を、屈折率計を用いて測定したところ、1.54（600nm）であり、赤色蛍光変換層の屈折率よりも小さいことを確認した。

50 【0081】（2）有機EL素子の作製

一方、縦 25 mm、横 75 mm、厚さ 1.1 mm のガラス基板（コーニング 7059）上に、厚さ 120 nm の ITO 膜をスパッタリング法により全面的に成膜した。この ITO 膜上に、ポジ型フォトレジスト HPR204（富士ハントエレクトロニクステクノロジー（株）製）をスピンコートし、温度 80℃、時間 10 分の条件で乾燥した。次いで、フォトマスクを介して、露光量が 100 mJ/cm^2 となるように、高圧水銀灯を光源としたコンタクト露光を行った。現像液として TMAH（テトラメチルアンモニウムヒドロキシド）を用いて、露光部を現像した。次いで、オープンを用いて、温度 130℃ の条件でポストバーク処理した後、臭化水素酸水溶液をエッチャントとして用いて、ITO 膜をエッチングした。その後、剥離液 N303（長瀬産業（株）製）を用いてポジ型レジストを除去し、150 mm×50 mm の ITO パターンを形成した。

【0082】次いで、ITO パターンが形成されたガラス基板をイソプロピルアルコール洗浄および紫外線洗浄した後、この基板を、蒸着装置（日本真空技術（株）

MTDATA：蒸着速度 0.1~0.3 nm/sec.、膜厚 60 nm

NPD：蒸着速度 0.1~0.3 nm/sec.、膜厚 20 nm

DPVBi：蒸着速度 0.1~0.3 nm/sec.、膜厚 50 nm

Alq：蒸着速度 0.1~0.3 nm/sec.、膜厚 20 nm

Mg：蒸着速度 1.3~1.4 nm/sec.、膜厚 200 nm

Ag：蒸着速度 0.1 nm/sec.、膜厚 200 nm

【0083】得られた有機 EL 素子の下部電極（ITO パターン、陽極）と、対向電極である上部電極（陰極）との間に、DC 12 V の電圧を印加して発光させた。色彩色差計 CS100（ミノルタ（株）製）を用いて発光輝度を測定したところ、 200 cd/m^2 という値が得られ、CIE 色度座標は、 $X=0.14$ 、 $Y=0.20$ である青色の発光が得られることを確認した。

【0084】（3）有機 EL 表示装置の作製

上記（1）で得られた、ガラス基板に形成された赤色変換基板を、透光性層側から上記（2）で得られた有機 EL 素子の発光面（下部電極側）に積層して、実施例 1 の有機 EL 表示装置とした。得られた有機 EL 表示装置において、下部電極（ITO パターン、陽極）と、対向電極である上部電極（陰極）との間に、DC 12 V の電圧を印加して発光させた。色彩色差計 CS100（ミノルタ（株）製）を用いて発光輝度を測定したところ、 70 cd/m^2 という値が得られ、変換効率が 35% であることを確認した。また、得られた発光についての、JIS Z 8701 に準拠した CIE 色度座標は、 $X=0.61$ 、 $Y=0.34$ であり、赤色（レッド）の強い発光が得られることを確認した。

【0085】〔実施例 2〕実施例 1 における #800 の紙やすりの代りに、#600 のアルミナを固定したラッピングフィルム（住友スリーエム（株）製）を用いた場合は、実施例 1 と同様に表面に凹凸形状を有する赤色変

製）内の基板ホルダーに固定した。そして、蒸着装置内のモリブテン製の加熱ボードに、正孔注入材料として、4,4',4''-トリス〔N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ〕トリフェニルアミン（MTDATA）および 4,4'-ビス〔N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ〕ビフェニル（NPD）、有機発光材料として、4,4'-ビス（2,2-ジフェニルビニル）ビフェニル（DPVBi）、電子注入材料として、トリス（8-キノリノール）アルミニウム（Alq）をそれぞれ充填し、さらに対向電極（陰極）材料としての銀ワイヤーをタングステン製フィラメントに、同じくマグネシウムリボンをモリブテン製の加熱ボードに装着した。その状態で、蒸着装置の真空度を 5×10^{-7} Torr まで減圧し、以下の蒸着速度および膜厚となるように、正孔注入層から陰極の形成まで、途中で真空状態を破らず、一回の真空引きで順次積層し、有機 EL 素子を作製した。なお、対向電極の銀およびマグネシウムは、それぞれ同時蒸着し、合わせて膜厚が 200 nm となるように成膜した。

換層を作製した。この赤色蛍光変換層表面における凹凸をレーザー顕微鏡を用いて測定したところ、凹凸形状における隣接する凸部の頂点間の平均距離は $4.0 \mu\text{m}$ であり、凹凸形状における凸部の頂点と凹部の底点との平均距離は $2.5 \mu\text{m}$ であった。

【0086】次いで、研磨処理した赤色蛍光変換層の上に、実施例 1 と同様に透光性層を積層して、透光性層付きの赤色蛍光変換基板を作製した。次いで、得られた赤色蛍光変換基板を、実施例 1 と同様に作製した有機 EL 素子の発光面（下部電極側）に積層して、実施例 2 の有機 EL 表示装置とした。得られた有機 EL 表示装置において、下部電極と、上部電極との間に、DC 12 V の電圧を印加して発光させた。色彩色差計 CS100 を用いて発光輝度を測定したところ、 68 cd/m^2 という値が得られ、変換効率が 34% であることを確認した。また、得られた発光についての CIE 色度座標は、 $X=0.62$ 、 $Y=0.34$ であり、赤色（レッド）の強い発光が得られることを確認した。

【0087】〔実施例 3〕実施例 1 における #800 の紙やすりの代りに、サンドブラスト処理を行った場合は、実施例 1 と同様に表面に凹凸形状を有する赤色変換層を作製した。この赤色蛍光変換層表面における凹凸を、レーザー顕微鏡を用いて測定したところ、凹凸形状における隣接する凸部の頂点間の平均距離は $7.0 \mu\text{m}$ であり、凹凸形状における凸部の頂点と凹部の底点との

平均距離は $4.0\mu\text{m}$ であった。次いで、研磨処理した赤色蛍光変換層の上に、実施例1と同様に透光性層を積層して、透光性層付きの赤色蛍光変換基板を作製した。次いで、得られた赤色蛍光変換基板を、実施例1と同様に作製した有機EL素子の発光面（下部電極側）に積層して、実施例3の有機EL表示装置とした。得られた有機EL表示装置において、下部電極と、上部電極との間に、DC12Vの電圧を印加して発光させた。色彩色差計CS100を用いて発光輝度を測定したところ、 $66\text{cd}/\text{m}^2$ という値が得られ、変換効率が33%であることを確認した。また、得られた発光についてのCIE色度座標は、 $X=0.61$ 、 $Y=0.35$ であり、赤色（レッド）の強い発光が得られることを確認した。

【0088】〔実施例4〕透光性層として、実施例1における光硬化型樹脂JNPC06の代りに、ポリビニルアルコール水溶液（平均分子量20,000、濃度10重量%）を用いたほかは、実施例1と同様に透光性層付きの赤色変換基板を作製した。この透光性層のみの屈折率を、屈折率計を用いて測定したところ、1.53（波長600nm）であり、赤色蛍光変換層の屈折率（1.58）よりも小さいことを確認した。また、透光性層を積層する前の赤色蛍光変換層表面における凹凸を、レーザー顕微鏡を用いて測定したところ、凹凸形状における隣接する凸部の頂点間の平均距離は $2.5\mu\text{m}$ であり、凹凸形状における凸部の頂点と凹部の底点との平均距離は $1.1\mu\text{m}$ であった。次いで、得られた透光性層付きの赤色蛍光変換基板を、実施例1と同様に作製した有機EL素子の発光面（下部電極側）に積層して、実施例4の有機EL表示装置とした。得られた有機EL表示装置において、下部電極と、上部電極との間に、DC12Vの電圧を印加して発光させた。色彩色差計CS100を用いて発光輝度を測定したところ、 $68\text{cd}/\text{m}^2$ という値が得られ、変換効率が34%であることを確認した。また、得られた発光についてのCIE色度座標は、 $X=0.62$ 、 $Y=0.36$ であり、赤色（レッド）の強い発光が得られることを確認した。

【0089】〔実施例5〕実施例1の赤色蛍光変換層用組成物におけるポリ塩化ビニル樹脂（平均分子量2万）の代りに、アクリレート系の光硬化レジストV259PA（新日鉄化学（株）製、固形分50重量%）を用いたほかは、実施例1と同様に赤色蛍光変換層用組成物を得た。得られた赤色蛍光変換層用組成物を、縦25mm、横75mm、厚さ1.1mmのガラス基板（コーニング7059）上に、スピンコートを用いて塗布し、温度80℃、時間10分の条件で乾燥した。この状態で、高圧水銀灯を光源とするコンタクト式露光機に装着し、赤色蛍光変換層用組成物の積層面側から露光量が $1000\text{mJ}/\text{cm}^2$ となるように、紫外線（波長365nm）を照射して、 $20\mu\text{m}$ の厚さの赤色蛍光変換層を得た。この赤色蛍光変換層の屈折率を、屈折率計を用いて

測定したところ、1.59（600nm）であった。次いで、実施例1と同様に、この膜表面に凹凸を形成した。レーザー顕微鏡を用いて測定したところ、凹凸形状における隣接する凸部の頂点間の平均距離は $3.2\mu\text{m}$ であり、凹凸形状における凸部の頂点と凹部の底点との平均距離は $1.7\mu\text{m}$ であった。次いで、得られた赤色蛍光変換層上に、透光性層用材料であるポリメタクリル酸メチル（平均分子量25,000）のテトラクロロエタン溶液をスピンコートし、温度80℃、時間10分の条件で乾燥して、透光性層付きの赤色蛍光変換基板を作製した。なお、透光性層のみの屈折率を、屈折率計を用いて測定したところ、1.47（600nm）であり、赤色蛍光変換層の屈折率よりも小さいことを確認した。次いで、得られた透光性層付きの赤色蛍光変換基板を、実施例1と同様に作製した有機EL素子の発光面（下部電極側）に積層して、実施例5の有機EL表示装置とした。得られた有機EL表示装置において、下部電極と、上部電極（陰極）との間に、DC12Vの電圧を印加して発光させた。色彩色差計CS100を用いて発光輝度を測定したところ、 $66\text{cd}/\text{m}^2$ という値が得られ、変換効率が33%であることを確認した。また、得られた発光についてのCIE色度座標は、 $X=0.61$ 、 $Y=0.35$ であり、赤色（レッド）の強い発光が得られることを確認した。

（下部電極側）に積層して、実施例5の有機EL表示装置とした。得られた有機EL表示装置において、下部電極と、上部電極（陰極）との間に、DC12Vの電圧を印加して発光させた。色彩色差計CS100を用いて発光輝度を測定したところ、 $66\text{cd}/\text{m}^2$ という値が得られ、変換効率が33%であることを確認した。また、得られた発光についてのCIE色度座標は、 $X=0.61$ 、 $Y=0.35$ であり、赤色（レッド）の強い発光が得られることを確認した。

【0090】〔実施例6〕実施例5において作製した赤色蛍光変換基板上に積層した透光性層上に、さらに保護膜として二酸化珪素（ SiO_2 ）膜を、基板温度160℃、真空度 1×10^{-6} の条件にてスパッタリングして、成膜した。次いで、この二酸化珪素（ SiO_2 ）膜上に、実施例1に準じて有機EL素子を形成した。すなわち、厚さ150nmのITO膜（表面抵抗 $20\Omega/\square$ ）をスパッタリング法により全面的に成膜した。このITO膜等をイソプロピルアルコール洗浄および紫外線洗浄した後、蒸着装置（日本真空技術（株）製）内の基板ホルダーに固定した。そして、蒸着装置内のモリブテン製の加熱ボードに、正孔注入材料としてMTDATAおよびNPD、有機発光材料としてDPVBi、ドーパントとしてDPAVB、電子注入材料としてAlqをそれぞれ充填し、さらに対向電極（陰極）材料としての銀ワイヤーをタングステン製フィラメントに、同じくマグネシウムリボンをもリブテン製の加熱ボードに装着した。その状態で、蒸着装置の真空度を $5\times 10^{-7}\text{torr}$ まで減圧し、以下の蒸着速度および膜厚となるように、正孔注入層から陰極の形成まで、途中で真空状態を破らず、一回の真空引きで順次積層し、有機EL素子を作製した。なお、DPVBiおよびDPAVBは同時蒸着して、DPAVBのドーパント量が重量比で1.4となるように成膜した。また、対向電極の銀およびマグネシウムについても同時蒸着し、合わせて膜厚が200nmとなるように成膜した。

MTDATA : 蒸着速度 0.1 ~ 0.3 nm/sec., 膜厚 60 nm
 NPD : 蒸着速度 0.1 ~ 0.3 nm/sec., 膜厚 20 nm
 DPVBi : 蒸着速度 0.1 ~ 0.3 nm/sec., 膜厚 50 nm
 DPAVB : 蒸着速度 0.05 nm/sec.
 Alq : 蒸着速度 0.1 ~ 0.3 nm/sec., 膜厚 20 nm
 Mg : 蒸着速度 1.3 ~ 1.4 nm/sec., 膜厚 200 nm
 Ag : 蒸着速度 0.1 nm/sec., 膜厚 200 nm

【0091】得られた有機EL素子の下部電極と、対向電極である上部電極（陰極）との間に、DC 8 Vの電圧を印加して発光させた。色彩色差計CS100を用いて発光輝度を測定したところ、 33 cd/m^2 という値が得られ、CIE色度座標は、 $X=0.61$, $Y=0.35$ である赤色の強い発光が得られることを確認した。また、赤色蛍光変換層を機械的に削って、下地の発光を測定したところ、 100 cd/m^2 という値が得られ、CIE色度座標は、 $X=0.16$, $Y=0.24$ である青色の発光が得られることを確認した。

【0092】〔比較例1〕実施例1において、赤色蛍光変換層の研磨処理を行わなかったほかは、実施例1と同様に赤色蛍光変換層を作製した。この赤色蛍光変換層表面における凹凸をレーザー顕微鏡を用いて測定したところ、表面は平滑であり、特に表面凹凸は観察されなかった。また、赤色蛍光変換層の屈折率を、屈折率計を用いて測定したところ、1.58 (600 nm)であった。

【0093】次いで、平滑な赤色蛍光変換層の上に、実施例1と同様に透光性層を積層して、透光性層付きの赤色蛍光変換層を作製した。なお、透光性層のみの屈折率を、屈折率計を用いて測定したところ、1.54 (600 nm)であった。次いで、得られた透光性層付きの赤色蛍光変換基板を、実施例1と同様に作製した有機EL素子の発光面（下部電極側）に積層して、比較例1の有機EL表示装置とした。得られた有機EL表示装置において、下部電極（ITOパターン、陽極）と、対向電極である上部電極（陰極）との間に、DC 12 Vの電圧を印加して発光させた。色彩色差計CS100を用いて発光輝度を測定したところ、 60 cd/m^2 という値が得られ、変換効率が30%であることを確認した。また、得られた発光についてのCIE色度座標は、 $X=0.59$, $Y=0.36$ であり、赤色（レッド）の発光が得られることを確認した。

【0094】

【発明の効果】以上、本発明の光学的表示装置によれば、色変換層の屈折率と透光性層の屈折率との大小関係を規定するとともに、色変換層と透光性層との界面構造を工夫することにより、蛍光物質で全方位に放射される光を十分に利用することができ、容易に発光輝度を向上させることができた。また、本発明の別の光学的表示装置によれば、中間層の屈折率と透光性層の屈折率との大小関係を規定するとともに、中間層と透光性層との界面構造等を工夫することにより、蛍光物質で

全方位に放射される光を十分に利用することができ、容易に発光輝度を向上させることができた。また、本発明の光学的表示装置の製造方法によれば、蛍光物質で全方位に放射される光を十分に利用することができ、発光輝度が高い光学的表示装置を効率的に得ることができた。その他、本発明の光学的表示装置は、有機EL素子から発光された光を長波長に変換することができるため、有機EL素子と組み合わせて、色変換表示装置としても使用することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】第1の実施形態における有機EL表示装置の断面を模式的に示す図である。

【図2】従来の有機EL表示装置の断面を模式的に示す図である（その1）。

【図3】第2の実施形態における有機EL表示装置の製造工程を模式的に示す図である。

【図4】第3の実施形態における有機EL表示装置の製造工程を模式的に示す図である。

【図5】有機EL素子の断面を模式的に示す図である。

【図6】従来の有機EL表示装置の断面を模式的に示す図である（その2）。

【図7】従来の有機EL表示装置の断面を模式的に示す図である（その3）。

【図8】従来の有機EL表示装置の断面を模式的に示す図である（その4）。

【図9】従来の有機EL表示装置の断面を模式的に示す図である（その5）。

【符号の説明】

- 10 面状発光体（有機EL素子）
- 11 発光面
- 12 透光性層（透光性基材）
- 13 出射面（界面）
- 14 色変換層（色変換用組成物）
- 15 界面
- 16 蛍光物質
- 18 光学的表示装置（有機EL表示装置）
- 20 陰極
- 22 陽極
- 24, 26, 28 色変換層
- 30, 32, 34 陽極
- 40, 44, 52 基材
- 42, 54 色変換層（色変換用組成物）
- 45 界面

25

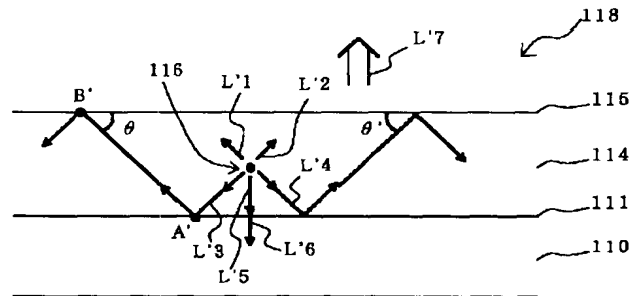
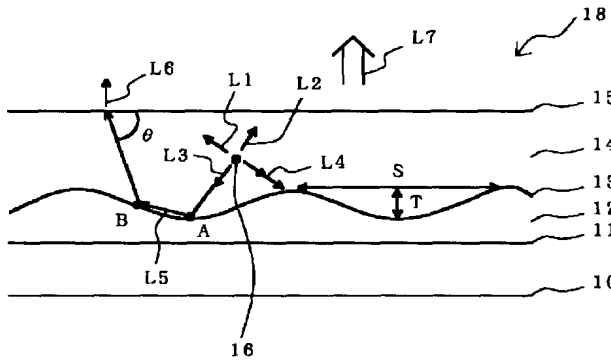
26

47, 55 凹凸形状
48, 58 透光性層

50, 60 有機EL素子
56 中間層

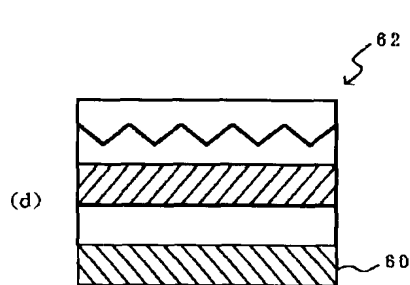
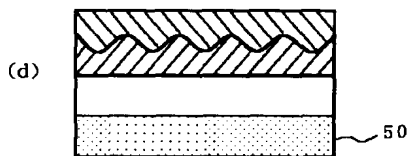
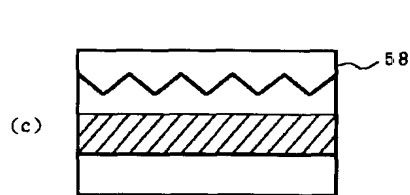
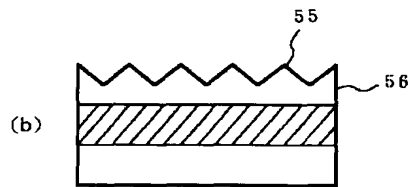
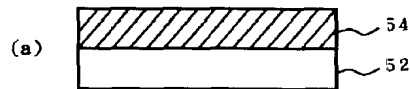
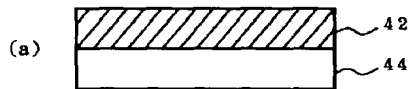
【図1】

【図2】

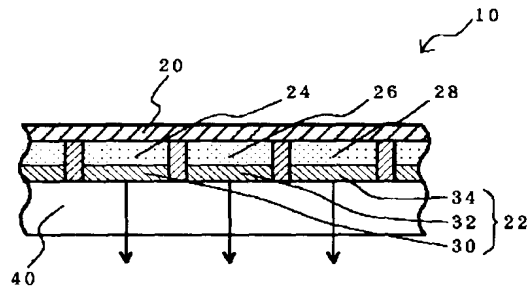


【図3】

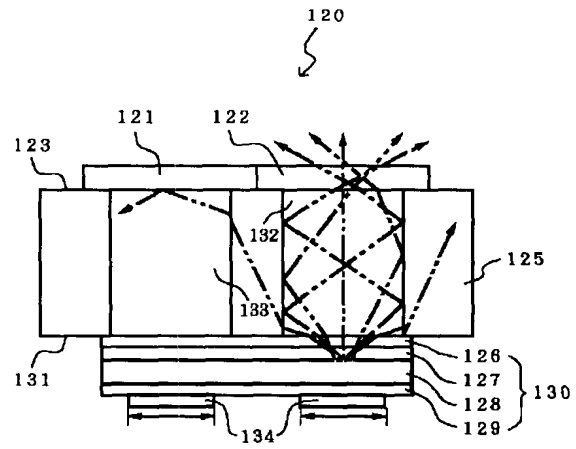
【図4】



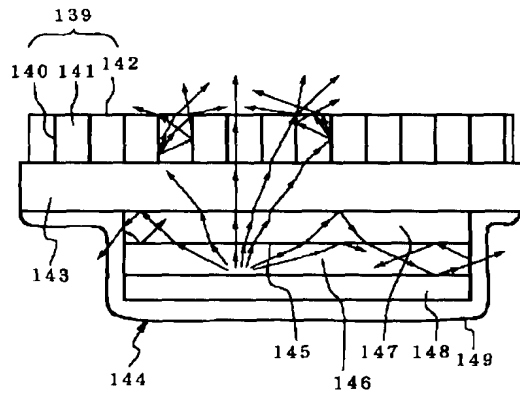
【図 5】



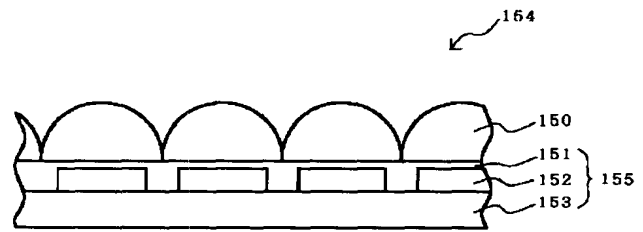
【図 6】



【図 7】



【図 8】



【図 9】

